

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2004 年 6 月 24 日 (24.06.2004)

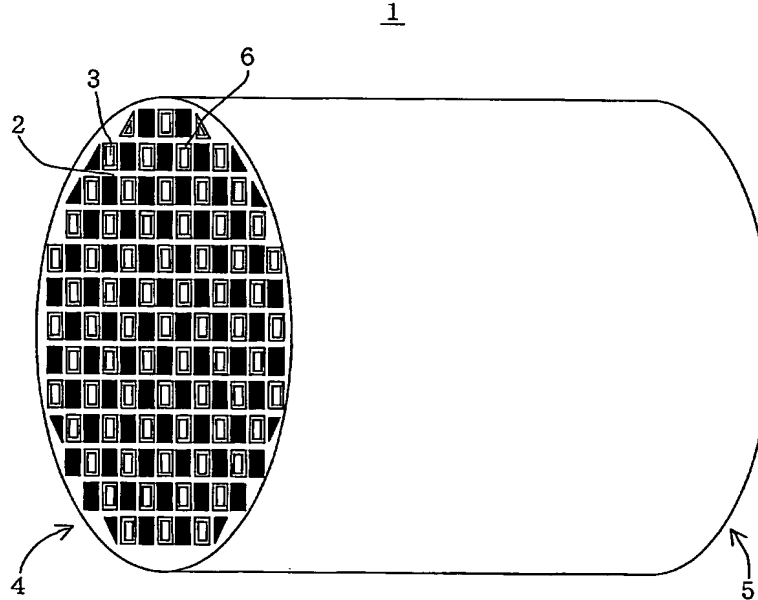
PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/052501 A1

- (51) 国際特許分類⁷: B01D 39/20, 46/00, F01N 3/02 467-8530 愛知県 名古屋市 瑞穂区 須田町 2 番 5 6 号 Aichi (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2003/015795 (72) 発明者; および
- (22) 国際出願日: 2003 年 12 月 10 日 (10.12.2003) (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 土方 俊彦 (HIJIKATA, Toshihiko) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県 名古屋市 瑞穂区 須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (74) 代理人: 渡邊 一平 (WATANABE, Kazuhira); 〒111-0053 東京都 台東区 浅草橋 3 丁目 20 番 18 号 第 8 菊星タワービル 3 階 Tokyo (JP).
- (30) 優先権データ:
特願 2002-358470
2002 年 12 月 10 日 (10.12.2002) JP (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, [続葉有]
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本碍子株式会社 (NGK INSULATORS, LTD.) [JP/JP]; 〒

(54) Title: CERAMIC HONEYCOMB FILTER

(54) 発明の名称: セラミックハニカムフィルタ



(57) Abstract: A ceramic honeycomb filter characterized by a quotient of a value, the value obtained by raising to the third power the porosity of a diaphragm carrying a catalyst (% ratio of the volume of all pores to the total volume of diaphragm including that of pores), divided by average pore diameter (μm), which quotient is 0.8×10^4 or less, and characterized by a diaphragm porosity with respect to pores of 100 nm or greater diameter (% ratio of the volume of pores of 100 nm or greater diameter to the total volume of diaphragm including that of pores), which is 5% or below. Low-temperature disposal of particulate substances, such as soot, deposited on the diaphragm can be effected in this ceramic honeycomb filter.

(57) 要約: 本発明のセラミックハニカムフィルタは、触媒が担持された隔壁の気孔率（隔壁の細孔を含めた全体積に対する、全細孔の体積の割合）（%）を 3 乗した値

[続葉有]



LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK,

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

を平均細孔径 (μm) の値で除した値が 0.8×10^4 以下であるとともに、隔壁の細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率 (隔壁の細孔を含めた全体積に対する、細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔の体積の割合) (%) が 5% 以下であることにより、隔壁に堆積した煤等の粒子状物質が低温で処理される。

明 細 書

セラミックハニカムフィルタ

技術分野

本発明は、セラミックハニカムフィルタに関し、さらに詳しくは、触媒によって、隔壁に堆積した煤等の粒子状物質が低温で処理されることが可能なセラミックハニカムフィルタに関する。

背景技術

従来、排気ガス中の微粒子、特に、ディーゼルエンジン等の排気ガス中に含まれる煤等の粒子状物質を捕集するフィルタ（以下、D P Fということがある）等として、セラミックからなる多孔質の隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定のセルの一方の開口端部及び残余のセルの他方の開口端部が封止されてなるとともに、その隔壁に触媒が担持されてなるセラミックハニカムフィルタが用いられていた（例えば、特公平6-96095号公報参照）。

このようなセラミックハニカムフィルタは、フィルタに粒子状物質を捕集した後、担持した触媒によって煤等の粒子状物質を燃焼することによって再生して用いられている。

しかしながら、このセラミックハニカムフィルタに堆積した粒子状物質を触媒により処理する際に、粒子状物質の堆積量が多すぎたり、再生条件の変動等により、粒子状物質の燃焼温度が高温となり、セラミックハニカムフィルタが破損や溶損するという問題があった。

また、近年、セラミックハニカムフィルタ、特に、D P Fに触媒を担持させ、捕集された煤等の粒子状物質を連続的に再生する連続再生型D P Fが主流となりつつある。この連続再生型D P Fは、ディーゼルエンジンの略全域に亘る運転状態において、担持した触媒の酸化処理可能な温度以上の排気ガスをD P Fに流入し、用いるものである。

しかし、このような連続再生型D P Fを搭載したディーゼルエンジンにおいては、燃料消費率向上の観点から、排気ガスの温度を低下させることが要請されて

いるが、上述したようにDPFに担持した触媒の酸化処理可能な温度以上の排気ガスを通気しなければならず、排気ガスの温度を所定の温度以下にすることができないため、燃料消費率の悪化が避けられないという問題があった。

本発明は、上述の問題に鑑みてなされたものであり、触媒によって、隔壁に堆積した煤等の粒子状物質が低温で処理されることが可能なセラミックハニカムフィルタを提供する。

発明の開示

本発明は上記課題を解決すべく、排気ガス温度、スート発生量、排気ガス流量等を固定して評価することが可能なバーナ装置を用いて研究を重ねた結果、セラミックハニカムフィルタを構成する隔壁の気孔率及び平均細孔径、特に、気孔率が、上述した触媒の酸化処理能力に大きく影響を与えており、この気孔率及び平均細孔径を所定の範囲とすることで、隔壁に堆積した煤等の粒子状物質が触媒によって処理される温度を、低下させることができることを見出し、本発明を完成させた。

すなわち、本発明のセラミックハニカムフィルタは、セラミックからなる多孔質の隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の開口端部及び残余の前記セルの他方の開口端部が封止されてなるとともに、前記隔壁に触媒が担持されてなるセラミックハニカムフィルタであって、前記触媒が担持された前記隔壁の気孔率（前記隔壁の細孔を含めた全体積に対する、全細孔の体積の割合）（％）を3乗した値を平均細孔径（ μm ）の値で除した値が 0.8×10^4 以下であるとともに、前記隔壁の細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率（前記隔壁の細孔を含めた全体積に対する、細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔の体積の割合）（％）が5％以下であることを特徴とする。

また、本発明においては、前記隔壁の細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率（％）が4％以下であることが好ましい。

また、前記触媒が担持された前記隔壁の気孔率（％）を3乗した値を平均細孔径（ μm ）の値で除した値が 0.65×10^4 以下であるとともに、前記隔壁の細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率（％）が4％以下であることが好

ましい。

また、本発明においては、前記隔壁の厚さが15mil以下で、かつセル密度が200セル/平方インチ以上であることが好ましい。上述した隔壁の厚さはリブ厚とも称され、1milは1000分の1インチ（約0.025mm）のことである。

また、前記隔壁の主成分が、コージェライト、炭化珪素、窒化珪素、アルミナ、ムライト、アルミニウムチタネート、チタニア及びジルコニアからなる群から選ばれる少なくとも一つの化合物であることが好ましい。

図面の簡単な説明

図1は、本発明のセラミックハニカムフィルタの一の実施の形態を模式的に示す斜視図である。

図2は、本発明の実施例における、触媒が担持された隔壁の気孔率（％）を3乗した値を平均細孔径（ μm ）の値で除した値と、酸化処理温度（ $^{\circ}\text{C}$ ）との関係を示すグラフである。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明のセラミックハニカムフィルタの実施の形態を、図面を参照しつつ具体的に説明するが、本発明は、これに限定されて解釈されるものではなく、本発明の範囲を逸脱しない限りにおいて、当業者の知識に基づいて、種々の変更、修正、改良を加え得るものである。

本発明者は、本発明のセラミックハニカムフィルタを開発するに際し、まず、今までに連続再生型DPF等のセラミックハニカムフィルタにおいて、その酸化処理能力の評価測定は実際のエンジンを用いて行っていたが、エンジンを用いた評価測定では、排気ガス温度、スート発生量及び排気ガス流量等の酸化処理能力関係因子を固定することができないため、正確な評価ができていなかったことを踏まえ、これら因子を固定して評価することが可能なバーナ装置を用いて評価測定を行った。

この測定結果から、セラミックハニカムフィルタに担持した触媒の酸化処理能

力には、セラミックハニカムフィルタを構成する隔壁の気孔率及び平均細孔径、特に、気孔率が大きく影響していることが判明した。図1は、本発明のセラミックハニカムフィルタの一の実施の形態を模式的に示す斜視図である。

本実施の形態のセラミックハニカムフィルタ1は、セラミックからなる多孔質の隔壁2によって区画された流体の流路となる複数のセル3を有し、所定のセル3の一方の開口端部4及び残余のセル3の他方の開口端部5が封止されてなるとともに、隔壁2に触媒6が担持されてなるセラミックハニカムフィルタ1であって、触媒6が担持された隔壁2の気孔率（隔壁2の細孔を含めた全体積に対する、全細孔の体積の割合）（％）を3乗した値を平均細孔径（ μm ）の値で除した値が 0.8×10^4 以下であるとともに、隔壁2の細孔径が $100\mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率（隔壁2の細孔を含めた全体積に対する、細孔径が $100\mu\text{m}$ 以上の細孔の体積の割合）（％）が5％以下であることを特徴とする。

このように構成することによって、耐久性を向上されるとともに、隔壁2に担持した触媒6が効率的に使用され、隔壁2に堆積した煤等の粒子状物質を低温で処理されることが可能となる。

本実施の形態のセラミックハニカムフィルタ1は、一端面より煤等の粒子状物質を含んだ排気ガスを通気させると、封止されていないセル3の一方の開口端部4から、セラミックハニカムフィルタ1内部に排気ガスが流入し、濾過能を有する多孔質の隔壁2を通過する際に粒子状物質が捕集され、セル3の他方の開口端部5から浄化された排気ガスが排出される。このセラミックハニカムフィルタ1は排気ガスの熱やヒーター等の加熱手段を設けることによって、セラミックハニカムフィルタ1全体を加熱し、隔壁2に捕集された煤等の粒子状物質を二酸化炭素に酸化して外部に排出する。また、本実施の形態のセラミックハニカムフィルタ1は、隔壁2に触媒6を担持しているために、煤等の粒子状物質の活性化エネルギーを下げ、酸化処理温度を低下させる。

本実施の形態において、触媒6が担持された隔壁2の気孔率（％）を3乗した値を平均細孔径（ μm ）の値で除した値が 0.8×10^4 を超えると、及び／又は細孔径が $100\mu\text{m}$ 以上の細孔の気孔率（％）が5％を超えると、触媒6の処理温度が上昇し、セラミックハニカムフィルタ1によって捕集した煤等を酸化処

理するために必要となる熱量が増加する。このため、ディーゼルエンジン等の省エネルギー化を妨げたり、セラミックハニカムフィルタ 1 にヒーター等の加熱手段を設ける場合は電気等のエネルギーを余分に消費することとなる。

上述した気孔率 (%) は、水銀圧入法等を用いて隔壁 2 の細孔の体積を測定することで算出することができる。

本実施の形態においては、隔壁 2 の細孔径が $100\text{ }\mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率 (%) が 4 % 以下であることが好ましく、触媒 6 が担持された隔壁 2 の気孔率 (%) を 3 乗した値を平均細孔径 (μm) の値で除した値が 0.65×10^4 以下であるとともに、隔壁 2 の細孔径が $100\text{ }\mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率 (%) が 4 % 以下であることがさらに好ましい。このように構成することによって、上述した効果、作用をさらに向上させることができる。

また、本実施の形態においては、隔壁 2 の厚さが 15mil (約 0.38mm) 以下で、かつセル密度が 200セル/平方インチ (約 $31\text{セル}/\text{cm}^2$) 以上であることが好ましい。隔壁 2 の厚さが 15mil を超えると、また、セル密度が 200セル/平方インチ 未満であると、例えば、触媒 6 が担持された隔壁 2 の気孔率 (隔壁 2 の細孔を含めた全体積に対する、全細孔の体積の割合) (%) を 3 乗した値を平均細孔径 (μm) の値で除した値が 0.8×10^4 以下で、隔壁 2 の細孔径が $100\text{ }\mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率 (隔壁 2 の細孔を含めた全体積に対する、細孔径が $100\text{ }\mu\text{m}$ 以上の細孔の体積の割合) (%) が 5 % 以下であっても酸化処理温度の低減幅が小さい。この原因は、隔壁 2 が厚いほど隔壁 2 の熱容量が大きくなり、隔壁 2 に堆積した粒子状物質の燃焼熱による隔壁温度の上昇が低いと考えられる。また、セル密度が低いと隔壁表面積が小さくなり、隔壁 2 を通過する排気ガス流速が速くなる結果、隔壁 2 に堆積した粒子状物質の燃焼熱による隔壁温度の上昇が低くなることが考えられる。

また、本実施の形態においては、強度、耐熱性等の観点から、隔壁 2 の主成分が、コージェライト、炭化珪素、窒化珪素、アルミナ、ムライト、アルミニウムチタネート、チタニア及びジルコニアからなる群から選ばれる少なくとも一つの化合物であることが好ましい。本発明において、主成分とは成分の 80 質量%以上を占め、主結晶相となるものを意味する。

また、本実施の形態においては、セル 3 の端部を目封止するための封止部材として、上述した隔壁 2 の好適な主成分として挙げたものの中から選ばれる少なくとも一つの化合物を主成分として含むことが好ましく、隔壁 2 の主結晶相と同様の種類の結晶相を主結晶相として含むことがさらに好ましい。

本実施の形態のセラミックハニカムフィルタ 1 において、セル 3 の断面形状に特に制限はないが、製作上の観点から、三角形、四角形、六角形及びコルゲート形状のうちのいずれかであることが好ましい。セラミックハニカムフィルタ 1 の断面形状も特に制限はなく、例えば、図 1 に示すような円形状の他、楕円形状、レーストラック形状、長円形状、三角、略三角、四角、略四角形状等の多角形状や異形形状とすることができる。

本実施の形態に用いられる触媒 6 としては、酸化触媒であれば、特に限定はないが、例えば、白金、パラジウム、ロジウム等を好適例として挙げるができる。

本実施の形態のセラミックハニカムフィルタ 1 は、例えば、以下のような製造方法を用いて製造することができる。

まず、セラミックからなる多孔質の隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有するハニカム構造体を製作する。図示は省略するが、ハニカム構造体の原料粉末、例えば、炭化珪素粉末 100 質量部に対し、 γ -バインダーとして、例えば、メチルセルロース及びヒドロキシプロポキシルメチルセルロースを 0.5～5 質量部添加し、さらに界面活性剤及び水を 10～40 質量部添加し、造孔剤として、例えば、グラファイトを 5～40 質量部添加して、混合及び混練して可塑性の坏土を製作する。この坏土を真空脱気後、所望の形状の口金を用いて、流体の流路となる複数のセルを有するハニカム構造に押出成形する。図 1 に示すような最終的に得られるセラミックハニカムフィルタ 1 が、触媒 6 が担持された隔壁 2 の気孔率（隔壁 2 の細孔を含めた全体積に対する、全細孔の体積の割合）（％）を 3 乗した値を平均細孔径（ μm ）の値で除した値が 0.8×10^4 以下であるとともに、この隔壁 2 の細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率（隔壁 2 の細孔を含めた全体積に対する、細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔の体積の割合）（％）が 5％以下となるよう、上述した原料粉末及び造孔剤の粒径や粒

度分布で調整する。この段階で、上述した範囲となるよう調整が困難な場合は、触媒担持工程での調整が可能な範囲を考慮して、例えば、触媒6が担持される前のハニカム構造体の隔壁の気孔率(%)を3乗した値を平均細孔径(μm)の値で除した値が 1.0×10^4 以下であるとともに、触媒6が担持される前のハニカム構造体の隔壁の細孔径が $100\mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率(%)が5%以下となるようにしてもよい。

このようにして押出成形した坯土を、誘電乾燥、マイクロ波乾燥、及び熱風乾燥等により乾燥させてハニカム構造体を製作する。また、大型のセラミックハニカムフィルタ1等を製造する場合は、このようにして製作したハニカム構造体を、従来用いられる方法で、複数を組み合わせて用いてもよい。

次に、ハニカム構造体の両端面において、所定のセル3の一方の開口端部4及び残余のセル3の他方の開口端部5を、前述した坯土と略同一の原料からなる坯土で封止する。

次に、このようにして製作されたハニカム構造体に触媒6、例えば、白金を担持させてセラミックハニカムフィルタ1を製造する。この触媒6を担持させる方法は、当業者が通常行う方法でよく、例えば、触媒スラリーをウォッシュコートして乾燥、焼成することにより触媒6を担持させることができる。

本実施の形態においては、最終的に得られるセラミックハニカムフィルタ1が、触媒6が担持された隔壁2の気孔率(隔壁2の細孔を含めた全体積に対する、全細孔の体積の割合)(%)を3乗した値を平均細孔径(μm)の値で除した値が 0.8×10^4 以下であるとともに、この隔壁2の細孔径が $100\mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率(隔壁2の細孔を含めた全体積に対する、細孔径が $100\mu\text{m}$ 以上の細孔の体積の割合)(%)が5%以下となるように触媒6を担持させなければならない。得られたハニカム構造体の気孔率(%)と、担持させる触媒6の量を十分に考慮しなければならない。例えば、触媒6を担持する前のハニカム構造体の隔壁の気孔率を測定し、この気孔率から最適な触媒スラリーの濃度や量を決定し、ハニカム構造体に触媒6を担持させることが好ましい。これまでに、本実施の形態のセラミックハニカムフィルタ1の製造方法について説明したが、この製造方法に限定されるものではない。

(実施例)

以下、本発明を実施例に基づいてさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

全実施例及び全比較例において用いたセラミックハニカムフィルタの形状は、直径 ϕ 14.4 mm、軸方向の長さが15.2 mm、容積が2.5 リットルの円筒形であり、実施例6及び比較例6は炭化珪素、その他の実施例及び比較例においては全てコーージェライトを主成分とした。

各実施例及び各比較例のセラミックハニカムフィルタは、それぞれの原料粉末100質量部に対し、バインダーとして、ヒドロキシプロポキシルメチルセルロース等を4質量部添加し、さらに界面活性剤及び水を30.5質量部添加し、造孔剤として、グラファイト等を35質量部添加して、混合及び混練して可塑性の坏土を製作した。この坏土を真空脱気後、所望の形状の口金を用いて、所望のセル密度（セル／平方インチ）となるように押出成形した。

次に、得られた成形体を乾燥、及び所定のセルの一方の開口端部及び残余のセルの他方の開口端部を略同材質の封止材で封止した後、焼成してハニカム構造体を製作した。触媒としてパラジウム（Pd）及び白金（Pt）の貴金属を180 g／立方フィート、アルミナを主成分とするウォッシュコートをフィルタ表面積当たり略同等となる、300セル／平方インチ品が110 g／リットル、200セル／平方インチ品が90 g／リットル、100セル／平方インチ品が70 g／リットルとなる触媒スラリーを作成、このスラリーを真空吸引法でコートして乾燥、焼成しセラミックハニカムフィルタ（実施例1～13及び比較例1～6）を製造した。

各実施例及び各比較例のセラミックハニカムフィルタの気孔率（％）、平均細孔径（ μ m）を水銀圧入法により測定した。また、この測定結果から、触媒が担持された隔壁の気孔率（隔壁の細孔を含めた全体積に対する、全細孔の体積の割合）（％）を3乗した値を平均細孔径（ μ m）の値で除した値を算出した。結果を表1～3に示す。

(表 1)

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6
セル構造 (隔壁厚さ/セル密度)	12/300					
材料	コーゼライト					炭化珪素
気孔率 (%)	隔壁の細孔径が 100 μm 未満の細孔における気孔率 (%)					39.8
	隔壁の細孔径が 100 μm 以上の細孔における気孔率 (%)					2.2
	全気孔率 (%)					42
平均細孔径 (μm)	11.0	19.7	21.3	44.5	30.1	18.0
触媒条件	110					
	180					
気孔率 (%) の値の三乗/平均細孔径 (μm) の値 ($\times 10^4$)	0.67	0.67	0.4	0.23	0.65	0.41
酸化処理温度 ($^{\circ}\text{C}$)	300	290	270	270	270	270
捕集効率 (%)	95	90	92	86	90	94

(表2)

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
セル構造 (隔壁厚さ/セル密度)		12/300					
材 料		コージェライト					炭化珪素
気孔率 (%)	隔壁の細孔径が 100 μm 未満の 細孔における気孔率 (%)	41	50.4	54.6	32.2	50.4	46.5
	隔壁の細孔径が 100 μm 以上の 細孔における気孔率 (%)	1	0.6	2.4	6.8	5.6	2.5
	全気孔率 (%)	42	51	57	39	56	49
平均細孔径 (μm)		7.1	10.2	21.8	28.9	27.8	6.2
触媒 条件	ウオッシュコート量 (g/リットル)	110					
	貴金属量 (g/立方フィート)	180					
気孔率 (%) の値の三乗/平均細孔径 (μm) の値 ($\times 10^4$)		1.04	1.30	0.85	0.21	0.63	1.90
酸化処理温度 ($^{\circ}\text{C}$)		330	340	320	350	350	340
捕集効率 (%)		94	95	90	66	70	94

(表3)

	実施例 11	実施例 12	実施例 13	実施例 7	実施例 8	実施例 2	実施例 9	実施例 10
セル構造 (隔壁厚さ/セル密度)	17/100	12/100	17/200	12/200	15/300	12/300	10/300	8/300
材料	コーゼライト							
気孔率 (%)	隔壁の細孔径が 100 μm 未満の細孔における気孔率 (%)							
	50.5	48.7	49.4	47.8	47.1	48.9	45.1	41.3
	隔壁の細孔径が 100 μm 以上の細孔における気孔率 (%)							
全気孔率 (%)	1.5	2.3	1.6	2.2	1.9	2.1	2.9	3.7
	52	51	51	50	49	51	48	45
	20.9	20.0	20.3	19.4	17.5	19.7	17.7	14.6
平均細孔径 (μm)	70		90			110		
触媒条件	コージェライト							
	180							
気孔率 (%) の値の三乗/平均細孔径 (μm) の値 ($\times 10^4$)	コージェライト							
	0.67	0.66	0.65	0.64	0.67	0.67	0.62	0.62
酸化処理温度 ($^{\circ}\text{C}$)	310	300	300	290	290	290	270	270
捕集効率 (%)	98	91	98	89	96	90	87	85

また、各実施例及び各比較例のセラミックハニカムフィルタにおいて、バーナ装置を用いて酸化処理能力の評価を行った。試験条件は、燃焼流量と冷却流量を合計した全流量を $1.2 \text{ Nm}^3/\text{min}$ 、及び排気ガス中の NO の濃度を 300 ppm と一定とし、セラミックハニカムフィルタ入口側から 100 mm 上流の排気ガス温度と粒子状物質の発生量を変化させ、粒子状物質の発生量を増加させて行っても、全て酸化処理し、セラミックハニカムフィルタの圧損が上昇することのない排気ガス最低温度($^{\circ}\text{C}$)を求めた。酸化処理能力の評価試験における、この排気ガス最低温度($^{\circ}\text{C}$) (以下、酸化処理温度($^{\circ}\text{C}$)という)を表1～3に示す。

表1及び2に示した実施例1～6及び比較例1～6のセラミックハニカムフィルタにおける、触媒が担持された隔壁の気孔率(%)を3乗した値を平均細孔径(μm)の値で除した値と、酸化処理温度($^{\circ}\text{C}$)との関係を図2に示す。

図2に示すように、実施例1～6のセラミックハニカムフィルタは、酸化処理温度($^{\circ}\text{C}$)が低く、 300°C 以下の温度で、隔壁に堆積した煤等の粒子状物質が酸化処理されており、ディーゼルエンジンの燃料消費率向上を実現することができる。また、酸化処理温度($^{\circ}\text{C}$)が低いということは、特に、連続再生型DPF等として用いた場合、触媒の劣化を抑制することができ、結果として耐久性を向上させることができる。

また、各実施例及び各比較例のセラミックハニカムフィルタに、約 $2 \text{ g}/\text{時間}$ の煤を含んだ気体を通気させて、捕集効率(%)を測定した。結果を表1～3に示す。隔壁の細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率が 6.8% の比較例4及び隔壁の細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率が 5.6% の比較例5のセラミックハニカムフィルタは、捕集効率が 66% (比較例4)、 70% (比較例5)と低い値であった。

また、隔壁の厚さが 15 mil 以下で、かつセル密度が $200 \text{ セル}/\text{平方インチ}$ 以上であるセラミックハニカムフィルタ(実施例1～10)は、酸化処理温度($^{\circ}\text{C}$)が特に低くなっており、隔壁に堆積した煤等の粒子状物質が効果的に処理されていた。

産業上の利用可能性

以上説明したように、本発明のセラミックハニカムフィルタは、触媒によって、隔壁に堆積した煤等の粒子状物質が低温で処理されることから、燃焼排気ガスの処理等に好適に用いることができる。

請 求 の 範 囲

1. セラミックからなる多孔質の隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の開口端部及び残余の前記セルの他方の開口端部が封止されてなるとともに、前記隔壁に触媒が担持されてなるセラミックハニカムフィルタであって、

前記触媒が担持された前記隔壁の気孔率（前記隔壁の細孔を含めた全体積に対する、全細孔の体積の割合）（％）を3乗した値を平均細孔径（ μm ）の値で除した値が 0.8×10^4 以下であるとともに、前記隔壁の細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率（前記隔壁の細孔を含めた全体積に対する、細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔の体積の割合）（％）が5％以下であることを特徴とするセラミックハニカムフィルタ。

2. 前記隔壁の細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率（％）が4％以下である請求項1に記載のセラミックハニカムフィルタ。

3. 前記触媒が担持された前記隔壁の気孔率（％）を3乗した値を平均細孔径（ μm ）の値で除した値が 0.65×10^4 以下であるとともに、前記隔壁の細孔径が $100 \mu\text{m}$ 以上の細孔における気孔率（％）が4％以下である請求項1に記載のセラミックハニカムフィルタ。

4. 前記隔壁の厚さが 15 mil 以下で、かつセル密度が200セル／平方インチ以上である請求項1～3のいずれかに記載のセラミックハニカムフィルタ。

5. 前記隔壁の主成分が、コージェライト、炭化珪素、窒化珪素、アルミナ、ムライト、アルミニウムチタネート、チタニア及びジルコニアからなる群から選ばれる少なくとも一つの化合物である請求項1～4のいずれかに記載のセラミックハニカムフィルタ。

1 / 2

図 1

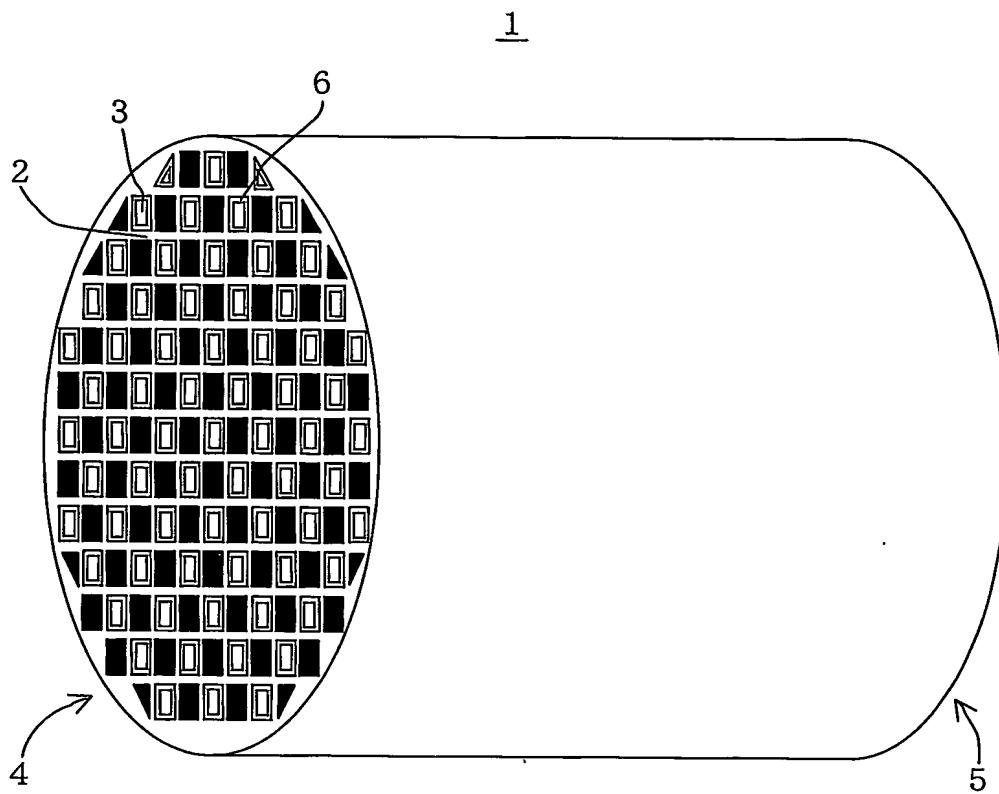
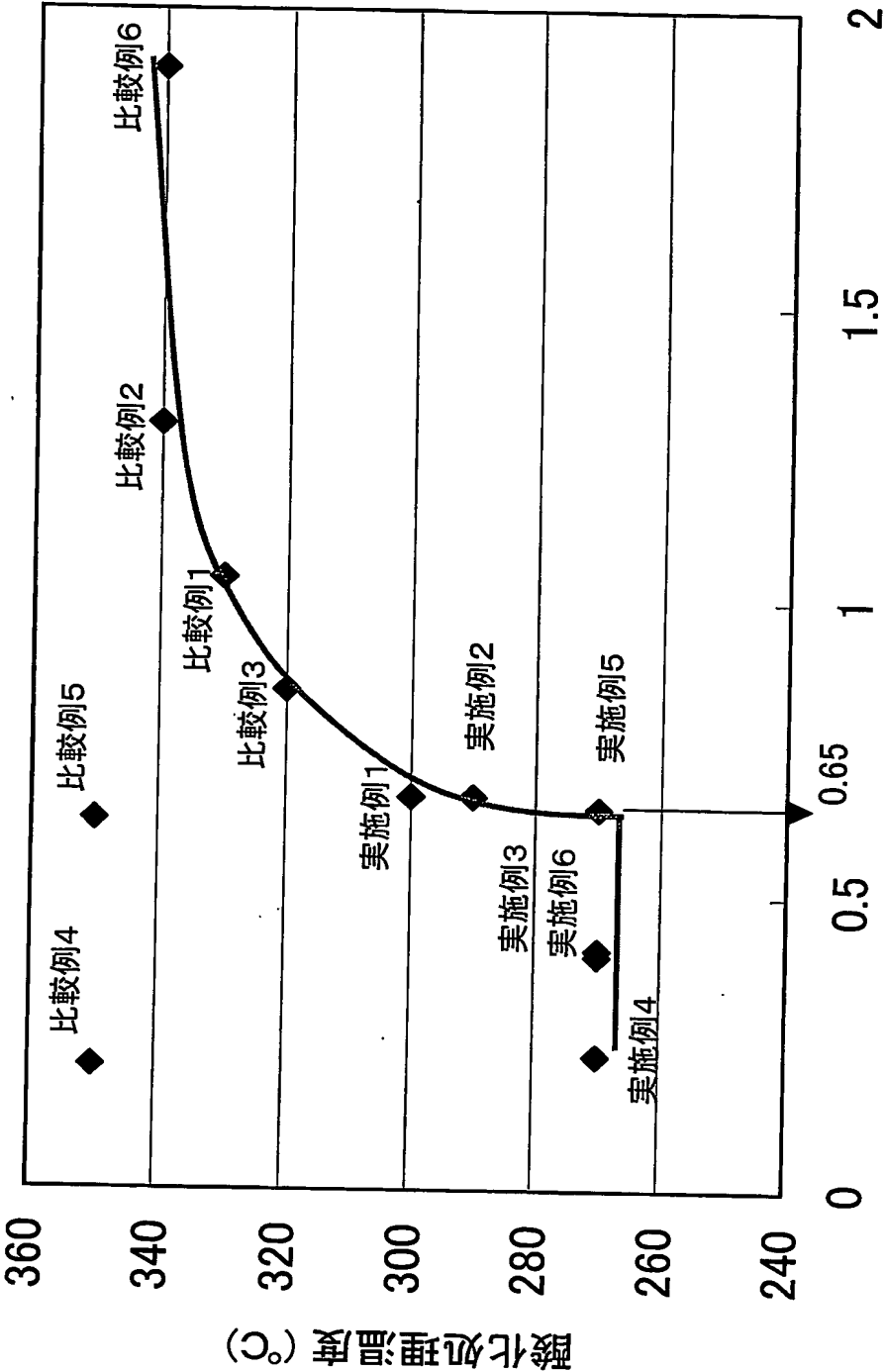


図 2



気孔率(%)の値の三乗/平均細孔径(μm)の値 (×10⁴)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/15795

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ B01D39/20, 46/00, F01N3/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ B01D39/20, 46/00, F01N3/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 02/026351 A1 (Ibiden Co., Ltd.), 04 April, 2002 (04.04.02), Claims; page 17, line 6 to page 22, line 32; Fig. 16 (Family: none)	1-5
A	JP 9-220423 A (Nippon Soken, Inc.), 26 August, 1997 (26.08.97), Claims; page 4, Par. No. [0018] to page 5, Par. No. [0033] (Family: none)	1-5
A	EP 834343 A1 (KABUSHIKI KAISHA TOYOTA CHUO KENKYUSHO), 08 April, 1998 (08.04.98), Full text & JP 10-156118 A	1-5

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"I" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>"&" document member of the same patent family</p>
--	---

Date of the actual completion of the international search
02 March, 2004 (02.03.04)

Date of mailing of the international search report
16 March, 2004 (16.03.04)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/15795

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2001-199777 A (NGK Insulators, Ltd.), 24 July, 2001 (24.07.01), Claims; page 5, Par. No. [0041] to page 6, Par. No. [0048] & WO 01/053233 A1 & EP 1170270 A1 & US 2002/0180117 A1	1-5
A	JP 2002-242655 A (Ibiden Co., Ltd.), 28 August, 2002 (28.08.02), Claims; page 3, Par. No. [0024] to page 5, Par. No. [0037]; Fig. 3 (Family: none)	1-5

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B01D39/20, 46/00, F01N3/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B01D39/20, 46/00, F01N3/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1926-1996
日本国公開実用新案公報	1971-2004
日本国登録実用新案公報	1994-2004
日本国実用新案登録公報	1996-2004

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	WO 02/026351 A1 (イビデン株式会社), 2002.04.04, 特許請求の範囲, 第17頁第6行-第22 頁第32行, 図16, (ファミリーなし)	1-5
A	JP 9-220423 A (株式会社日本自動車部品総合研究所) 1997.08.26, 特許請求の範囲, 第4頁段落【0018】 -第5頁段落【0033】, (ファミリーなし)	1-5
A	EP 834343 A1 (KABUSHIKI KAISHA TOYOTA CHUO KENKYUSH O), 1998.04.08, 全文 & JP 10-156118 A	1-5

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02.03.2004

国際調査報告の発送日

16.3.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
新居田 知生

4Q 8618

電話番号 03-3581-1101 内線 3466

C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2001-199777 A (日本碍子株式会社) , 2001. 07. 24, 特許請求の範囲, 第5頁段落【0041】 -第6頁段落【0048】 & WO 01/053233 A1 & EP 1170270 A1 & US 2002/0180117 A 1	1-5
A	JP 2002-242655 A (イビデン株式会社) , 2002. 08. 28, 特許請求の範囲, 第3頁段落【0024】 -第5頁段落【0037】, 図3, (ファミリーなし)	1-5

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.